

PCT/JP00/02665

日 本 国 特 許 庁
PATENT OFFICE
JAPANESE GOVERNMENT

09.06.00

EKU

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されて
いる事項と同一であることを証明する。
This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed
with this Office.

出 願 年 月 日
Date of Application:

1999年 4月26日

09/720343

出 願 番 号
Application Number:

REC'D 26 JUN 2000

平成11年特許願第118001号

出 願 人
Applicant(s):

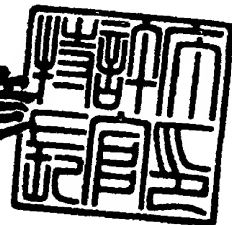
住友化学工業株式会社
トヨタ自動車株式会社

PRIORITY
DOCUMENT
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN
COMPLIANCE WITH RULE 17.1(a) OR (b)

2000年 5月12日

特許庁長官
Commissioner,
Patent Office

近 藤 隆 彦



出証番号 出証特2000-3035570

【書類名】 特許願

【整理番号】 P150038

【提出日】 平成11年 4月26日

【あて先】 特許庁長官殿

【国際特許分類】 C08L 23/08
C08L 23/10
C08L 53/00

【発明の名称】 熱可塑性樹脂組成物及びその射出成形体

【請求項の数】 9

【発明者】

 【住所又は居所】 千葉県市原市姉崎海岸5の1 住友化学工業株式会社内

 【氏名】 下條 盛康

【発明者】

 【住所又は居所】 千葉県市原市姉崎海岸5の1 住友化学工業株式会社内

 【氏名】 大川 健一

【発明者】

 【住所又は居所】 千葉県市原市姉崎海岸5の1 住友化学工業株式会社内

 【氏名】 神崎 進

【発明者】

 【住所又は居所】 愛知県豊田市トヨタ町1番地 トヨタ自動車株式会社内

 【氏名】 永井 隆之

【発明者】

 【住所又は居所】 愛知県豊田市トヨタ町1番地 トヨタ自動車株式会社内

 【氏名】 野村 孝夫

【発明者】

 【住所又は居所】 愛知県豊田市トヨタ町1番地 トヨタ自動車株式会社内

 【氏名】 松田 雅敏

【発明者】

 【住所又は居所】 愛知県豊田市トヨタ町1番地 トヨタ自動車株式会社内

【氏名】 岩井 久幸

【特許出願人】

【識別番号】 000002093

【氏名又は名称】 住友化学工業株式会社

【代表者】 香西 昭夫

【特許出願人】

【識別番号】 000003207

【氏名又は名称】 トヨタ自動車株式会社

【代表者】 和田 明広

【代理人】

【識別番号】 100093285

【弁理士】

【氏名又は名称】 久保山 隆

【電話番号】 06-6220-3404

【選任した代理人】

【識別番号】 100094477

【弁理士】

【氏名又は名称】 神野 直美

【電話番号】 06-6220-3404

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 010238

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 9701007

【ブルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 熱可塑性樹脂組成物及びその射出成形体

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

(1) 結晶性ポリプロピレン系樹脂：55～75重量%、(2) ビニル芳香族化合物含有ゴム又はビニル芳香族化合物含有ゴム及びエチレン- α -オレフィンランダム共重合体ゴムからなるエラストマー：10～30重量%、及び(3) 平均粒径3 μ m以下のタルク：15～25重量%とを溶融混練してなる組成物であって、かつ下記(a)～(c)の条件を充足することを特徴とする熱可塑性樹脂組成物。

(a) 結晶性ポリプロピレン系樹脂(1)とビニル芳香族化合物含有ゴム又はビニル芳香族化合物含有ゴム及びエチレン- α -オレフィンランダム共重合体ゴムからなるエラストマー(2)とを溶融混練させた際のビニル芳香族化合物含有ゴムに起因する小角X線散乱で得られる長周期が12～24 nmであること。

(b) 結晶性ポリプロピレン系樹脂(1)とビニル芳香族化合物含有ゴム又はビニル芳香族化合物含有ゴム及びエチレン- α -オレフィンランダム共重合体ゴムからなるエラストマー(2)とを溶融混練させた際のエラストマー粒子とマトリックスであるポリプロピレンの界面付近にあるエラストマー粒子がミクロ相分離し、粒子の形態をとり、その粒子径が30 nm以下であること。

(c) 結晶性ポリプロピレン系樹脂(1)の結晶性プロピレンホモポリマー部に帰属するガラス転移点(Tg_1)と結晶性ポリプロピレン系樹脂(1)にビニル芳香族化合物含有ゴム又はビニル芳香族化合物含有ゴム及びエチレン- α -オレフィンランダム共重合体ゴムからなるエラストマー(2)及びタルク(3)を溶融混練してなる組成物の結晶性プロピレンホモポリマー部に帰属するガラス転移点(Tg_2)の差($\Delta Tg = Tg_1 - Tg_2$)が、4.0～7.0℃であること。

【請求項 2】

結晶性ポリプロピレン系樹脂(1)が下記(1A)又は(1B)から選ばれた結晶性ポリプロピレンであることを特徴とする請求項1記載の熱可塑性樹脂組成

物。

(1A) 第1セグメントであるプロピレンホモポリマー部分のゲルパーミエーションクロマトグラフィー (GPC) 法による重量平均分子量 (M_w) / 数平均分子量 (M_n) 比であるQ値が3.0~5.0、 ^{13}C -NMRにより計算されるアイソタクチックペンタッド分率が0.98以上及び135℃テトラリン溶液の極限粘度が0.7~1.1 dl/gであり、第2セグメントであるエチレン-プロピレンランダムコポリマー部分の135℃テトラリン溶液の極限粘度が5.0~8.0 dl/g、エチレン/プロピレンの割合が25/75~35/65重量%比である結晶性エチレン-プロピレンブロックコポリマー。

(1B) 結晶性エチレン-プロピレンブロックコポリマー (1A) とGPC法によるQ値が3.0~5.0、 ^{13}C -NMRにより計算されるアイソタクチックペンタッド分率が0.98以上及び135℃テトラリン溶液の極限粘度が0.7~1.1 dl/gである結晶性プロピレンホモポリマーとの混合物。

【請求項3】

エラストマー (2) がビニル芳香族化合物含有ゴム及び1種類以上のエチレン- α -オレフィンランダム共重合体ゴムからなるエラストマーであることを特徴とする請求項1記載の熱可塑性樹脂組成物。

【請求項4】

エラストマー (2) がビニル芳香族化合物含有ゴム及び2種類以上のエチレン- α -オレフィンランダム共重合体ゴムからなるエラストマーであることを特徴とする請求項3記載の熱可塑性樹脂組成物。

【請求項5】

エラストマー (2) が下記 (2A) ビニル芳香族化合物含有ゴムと、(2B) エチレン-オクテンランダム共重合体ゴム、(2C) エチレン-ブテンランダム共重合体ゴム、又は(2D) エチレン-プロピレンランダム共重合体ゴムから選ばれた2種類以上のエチレン- α -オレフィンランダム共重合体ゴムとからなるエラストマーであり、各ゴム成分の組成物全体に対する含有量が下記の含有量であることを特徴とする請求項4記載の熱可塑性樹脂組成物。

(2A) ビニル芳香族化合物含有ゴム：3~15重量%

ビニル芳香族化合物重合体ブロックと共役ジエン系重合体ブロックからなるブロック共重合体であって、共役ジエン部分の二重結合が80%以上水素添加され、かつ、GPC法によるQ値が2.5以下、ビニル芳香族化合物含量が平均で10~20重量%、メルトフローレート(MFR、JIS-K-6758、230℃)が1~15g/10分であるビニル芳香族化合物含有ゴム。

(2B) エチレン-オクテンランダム共重合体ゴム: 0~15重量%

GPC法によるQ値が2.5以下、オクテン含量が15~45重量%、メルトフローレート(JIS-K-6758、190℃)が1~15g/10分であるエチレン-オクテンランダム共重合体ゴム。

(2C) エチレン-ブテンランダム共重合体ゴム: 0~10重量%

GPC法によるQ値が2.7以下、ブテン含量が15~35重量%、メルトフローレート(MFR、JIS-K-6758、190℃)が1~15g/10分であるエチレン-ブテンランダム共重合体ゴム。

(2D) エチレン-プロピレンランダム共重合体ゴム: 0~10重量%

GPC法によるQ値が2.7以下、プロピレン含量が20~30重量%、メルトフローレート(MFR、JIS-K-6758、190℃)が1~15g/10分であるエチレン-プロピレンランダム共重合体ゴム。

【請求項6】

エチレン-オクテンランダム共重合体ゴム(2B)の組成物全体に対する含有量が5~15重量%であることを特徴とする請求項5記載の熱可塑性樹脂組成物。

【請求項7】

熱可塑性樹脂組成物が次式 1)~3)

$$1) (X_{PP}) + (X_{st}) + (X_{EOR}) + (X_{EBR}) + (X_{EPR}) + (X_{talc}) = 100$$

$$2) 0.20 \leq \{ [(Y_{BC}) \times (Y_{EP}) + (X_{st}) + (X_{EOR}) + (X_{EBR}) + (X_{EPR})] / 100 \} \leq 0.30$$

$$3) 0.1 \leq \{ (Y_{BC}) \times (Y_{EP}) / [(Y_{BC}) \times (Y_{EP}) + (X_{st}) + (X_{EOR}) + (X_{EBR}) + (X_{EPR})] \}$$

〔式中、 (X_{pp}) は結晶性ポリプロピレン、 (X_{st}) はビニル芳香族化合物含有ゴム (2 A)、 (X_{EOR}) はエチレン-オクテンランダム共重合体ゴム (2 B)、 (X_{EBR}) はエチレン-ブテンランダム共重合体ゴム (2 C)、及び (X_{EPR}) はエチレン-プロピレンランダム共重合体ゴム (2 D) の重量%を示す。 (Y_{BC}) は結晶性エチレン-プロピレンブロックコポリマー (1 A) の重量%、 (Y_{EP}) は結晶性エチレン-プロピレンブロックコポリマー (1 A) 中の第 2 セグメントであるエチレン-プロピレンランダムコポリマー部分の重量分率 (重量分率は重量%/100 である。)を示し、 (X_{talC}) はタルクの重量%を示す。〕を満足し、

かつ該熱可塑性樹脂組成物のメルトフローインデックス (J I S - K - 6 7 5 8、230℃) が 35 g/10 min 以上であることを特徴とする請求項 5 又は 6 記載の熱可塑性樹脂組成物。

【請求項 8】

請求項 1 ~ 7 記載の熱可塑性樹脂組成物を射出成形方法により成形してなることを特徴とする射出成形体。

【請求項 9】

射出成形体が自動車内外装用射出成形体であることを特徴とする請求項 8 記載の射出成形体。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、剛性、耐衝撃性、成形加工性に優れた特徴を有する熱可塑性樹脂組成物及びこれを射出成形方法により成形した寸法安定性の優れた射出成形体、特に自動車内外装用射出成形体に関するものである。

【0002】

【従来の技術】

最近、自動車用材料は、軽量化、低コスト化等からみてプロピレン-エチレンブロックコポリマーが使用されている。しかし、従来のプロピレン-エチレンブロックコポリマー材料は、衝撃強度が低く、この衝撃強度を改良するために、プ

ロピレン-エチレンブロックコポリマーにエチレン-プロピレン共重合体ゴム、エチレン- α -オレフィン共重合体ゴム等を配合することが提案されている。ところが、エチレン-プロピレン共重合体ゴム、エチレン- α -オレフィン共重合体ゴム等を配合すると、衝撃強度は改良されるが、逆に剛性度及び熱変形温度等の熱的性質が低下し、自動車内外装用材料としては難点を有する。これを解決するために、更に炭酸カルシウム、硫酸バリウム、マイカ、結晶性ケイ酸カルシウム及びタルク等の無機充填剤を加えて配合することが提案されている。

【0003】

例えば、特開昭51-136735号公報には、プロピレンをベースとするエチレンブロック共重合体、エチレン-プロピレンラバー及びタルクからなる熱可塑性樹脂組成物が開示され、その物性が報告されている。また、エチレン-プロピレンゴムと同様にスチレン-ブタジエンゴムを使用できることが一般的に記載されているが、そのゴムを溶融混練した時の構造や状態等、及びそのゴムの分子量分布、メルトフローレート、スチレン含量等については開示がなされていない。

【0004】

また、特開平6-192500号公報には、プロピレン-エチレンブロック共重合体及びエチレン-ヘキセン-1共重合体からなるプロピレン系樹脂組成物が開示されている。更に、その他の配合成分として一般に樹脂組成物の製造方法において用いられている補助添加成分であるタルク等、スチレン-ブタジエン系ゴム等のブレンドが記載されている。しかし、そのゴムを溶融混練した時の構造や状態等、及びそのゴムの分子量分布、メルトフローレート、スチレン含量等については開示がなされていない。

【0005】

また、特開平6-192506号公報には、ポリプロピレン、エチレン-オクテン-1ランダム共重合体及びタルクからなるポリプロピレン組成物が開示されている。しかし、ビニル芳香族化合物含有ゴムを使用することについては開示がなされていない。

【0006】

上述のように、従来のプロピレン-エチレンブロックコポリマー、エチレン-プロピレン共重合体ゴム又はエチレン- α -オレフィン共重合体ゴム等及び無機充填剤からなる樹脂組成物は、自動車内外装用材料としては、衝撃強度と剛性のバランス及び射出成形加工性の点で未だ不十分であった。また、スチレン-ブタジエン系ゴム等を用いる技術も不十分であった。

【0007】

【発明が解決しようとする課題】

かかる状況において本発明は、結晶性ポリプロピレン系樹脂とエラストマー及びタルクからなる組成物において、物性の点においては内外装用材料として要求される衝撃強度及び剛性度を満足し、かつ、射出成形加工性に優れたポリプロピレン系樹脂組成物及びその射出成形体、特に自動車内外装用射出成形体を提供することを目的とする。

【0008】

【課題を解決するための手段】

本発明者は、特定の結晶性ポリプロピレン系樹脂を主体として用い、これに特定のエラストマー成分及びタルクを特定の組成比で溶融混練することにより、上記目的を満足するポリプロピレン系樹脂組成物及びその射出成形体を得られることを見出し本発明に到達した。

すなわち、本発明は、先ず、

(1) 結晶性ポリプロピレン系樹脂：55～75重量%、(2) ビニル芳香族化合物含有ゴム又はビニル芳香族化合物含有ゴム及びエチレン- α -オレフィンランダム共重合体ゴムからなるエラストマー：10～30重量%、及び(3) 平均粒径3 μ m以下のタルク：15～25重量%とを溶融混練してなる組成物であって下記(a)～(c)の条件を充足する熱可塑性樹脂組成物であり、

(a) 結晶性ポリプロピレン系樹脂(1)とビニル芳香族化合物含有ゴム又はビニル芳香族化合物含有ゴム及びエチレン- α -オレフィンランダム共重合体ゴムからなるエラストマー(2)とを溶融混練させた際のビニル芳香族化合物含有ゴムに起因する小角X線散乱で得られる長周期が12～24 nmであること。

(b) 結晶性ポリプロピレン系樹脂(1)とビニル芳香族化合物含有ゴム又はビ

ニル芳香族化合物含有ゴム及びエチレン- α -オレフィンランダム共重合体ゴムからなるエラストマー(2)とを溶融混練させた際のエラストマー粒子とマトリックスであるポリプロピレンの界面付近にあるエラストマー粒子がミクロ相分離し粒子の形態をとり、その粒子径が30nm以下であること。

(c) 結晶性ポリプロピレン系樹脂(1)の結晶性プロピレンホモポリマー部に帰属するガラス転移点(Tg_1)と結晶性ポリプロピレン系樹脂(1)にビニル芳香族化合物含有ゴム又はビニル芳香族化合物含有ゴム及びエチレン- α -オレフィンランダム共重合体ゴムからなるエラストマー(2)及びタルク(3)を溶融混練してなる組成物の結晶性プロピレンホモポリマー部に帰属するガラス転移点(Tg_2)の差($\Delta Tg = Tg_1 - Tg_2$)が、4.0~7.0℃であることに係るものである。

次に本発明は、上記のポリプロピレン系樹脂組成物を射出成形方法により成形してなる射出成形体に係るものである。

更に本発明は、自動車内外装用射出成形体に係るものである。

【0009】

【発明の実施の形態】

以下、本発明について詳細に説明する。

本発明の熱可塑性樹脂組成物は、(1)結晶性ポリプロピレン系樹脂：55~75重量%、(2)ビニル芳香族化合物含有ゴム又はビニル芳香族化合物含有ゴム及びエチレン- α -オレフィンランダム共重合体ゴムからなるエラストマー：10~30重量%、及び(3)平均粒径3 μ m以下のタルク：15~25重量%とを溶融混練してなる組成物である。

【0010】

本発明の結晶性ポリプロピレン系樹脂(1)とは、結晶性を有しておれば特に制限はなく、プロピレンホモポリマー、プロピレン-エチレンコポリマー、プロピレン- α -オレフィンコポリマー等が挙げられる。 α -オレフィンは炭素原子数4以上であって、例えば、ブテン、ペンテン、ヘキセン、ヘプテン、オクテン、デセン等が挙げられる。

【0011】

中でも、結晶性ポリプロピレン系樹脂（１）としては、（１Ａ）結晶性エチレン-プロピレンブロックコポリマー（１Ａ）又は上記の結晶性エチレン-プロピレンブロックコポリマー（１Ａ）と結晶性プロピレンホモポリマーとの混合物（１Ｂ）から選ばれた結晶性ポリプロピレンが好適に使用される。

【 0 0 1 2 】

ここに結晶性エチレン-プロピレンブロックコポリマー（１Ａ）とは、プロピレンホモポリマー部分（これを第１セグメントという。）とエチレン-プロピレンランダムコポリマー部分（これを第２セグメントという。）とからなる結晶性エチレン-プロピレンブロックコポリマーである。

【 0 0 1 3 】

第１セグメントであるプロピレンホモポリマー部分は、そのゲルパーミエーションクロマトグラフィー（GPC）法による重量平均分子量（ M_w ）／数平均分子量（ M_n ）比であるＱ値が 3.0～5.0、好ましくは 3.5～4.5 である。更に ^{13}C -NMRにより計算されるアイソタクチックペンタッド分率は 0.98 以上、好ましくは 0.99 以上である。また、135℃テトラリン溶液の極限粘度 $[\eta]_p$ は 0.7～1.1 dl/g、好ましくは 0.8～1.0 dl/g である。

【 0 0 1 4 】

第１セグメントであるプロピレンホモポリマー部分のＱ値が 3.0 未満の場合には流動性が悪化し、Ｑ値が 5.0 をこえると剛性と衝撃性のバランスにおいて好ましい結果が得られない。更にアイソタクチックペンタッド分率が 0.98 未満では目的の剛性、耐熱性等を満足することが難しい。また、極限粘度 $[\eta]_p$ が 0.7 dl/g 未満では衝撃強度が低くなり、1.1 dl/g をこえると流動性が悪化する。

【 0 0 1 5 】

第２セグメントであるエチレン-プロピレンランダムコポリマー部分は、その 135℃テトラリン溶液の極限粘度 $[\eta]_{EP}$ が 5.0～8.0 dl/g、好ましくは 5.5～7.5 dl/g である。更にエチレン含量 $[(C2')]_{EP}$ は、25～35 重量％で、好ましくは、27～33 重量％である。

【0016】

第2セグメントであるエチレン-プロピレンランダムコポリマー部分の極限粘度 $[\eta]_{EP}$ が 5.0 dl/g 未満では、剛性と衝撃性のバランスにおいて好ましい結果が得られない。また、 8.0 dl/g を超えるとブツ部が発生し、面品質の点において好ましい結果が得られない。更にエチレン含量 $[(C2')_{EP}]$ が25重量%未満又は35重量%をこえると、組成物の耐衝撃性に関して好ましい結果が得られない。

【0017】

また、エチレン-プロピレンランダムコポリマー部分（第2セグメント）とプロピレンホモポリマー部分（第1セグメント）の割合（第2セグメント/第1セグメント比）は、 $8/92 \sim 35/65$ 重量%比が好ましい。

【0018】

上記の結晶性エチレン-プロピレンブロックコポリマー（1A）と結晶性プロピレンホモポリマーとの混合物（1B）に用いられる結晶性プロピレンホモポリマーとは、第1セグメントであるプロピレンホモポリマー部分と同じ様な物性を有するものであって、そのゲルパーミエーションクロマトグラフィー（GPC）法による重量平均分子量（ M_w ）/数平均分子量（ M_n ）比であるQ値が $3.0 \sim 5.0$ 、好ましくは $3.5 \sim 4.5$ である。更に ^{13}C -NMRにより計算されるアイソタクチックペンタッド分率は 0.98 以上、好ましくは 0.99 以上である。また、 135°C テトラリン溶液の極限粘度 $[\eta]_p$ は $0.7 \sim 1.1 \text{ dl/g}$ 、好ましくは $0.8 \sim 1.0 \text{ dl/g}$ である。

【0019】

結晶性エチレン-プロピレンブロックコポリマー（1A）と結晶性プロピレンホモポリマーとの混合物（1B）に用いられる結晶性プロピレンホモポリマーのQ値が 3.0 未満の場合には流動性が悪化し、Q値が 5.0 をこえると剛性と衝撃性のバランスにおいて好ましくない。更にアイソタクチックペンタッド分率が 0.98 未満では目的の剛性、耐熱性等を満足することが難しい。また、極限粘度 $[\eta]_p$ が 0.7 dl/g 未満では衝撃強度が低くなり、 1.1 dl/g をこえると流動性が悪化する。

【0020】

このような結晶性ポリプロピレン系樹脂(1)はチーグラ-ナッタ触媒系、及び/又はメタロセン触媒系を用いて、バルク重合法、溶液重合法、スラリー重合法又は気相重合法、あるいはこれらの重合法を任意に組み合わせて製造することができる。

特に耐衝撃性が要求される用途に用いられるエチレン-プロピレンブロックコポリマーは、第1工程で第1セグメントである結晶性プロピレンホモポリマー部分が製造され、第2工程で第2セグメントであるエチレン-プロピレンランダムコポリマー部分が製造されてなるものが好ましい。

【0021】

本発明の結晶性ポリプロピレン系樹脂(1)は、組成物全体に対して55~75重量%が好ましい。

【0022】

本発明のビニル芳香族化合物含有ゴム又はビニル芳香族化合物含有ゴム及びエチレン- α -オレフィンランダム共重合体ゴムからなるエラストマー(2)について以下説明する。

【0023】

本発明のビニル芳香族化合物含有ゴム(2A)とは、ビニル芳香族化合物重合体ブロックと共役ジエン系重合体ブロックからなるブロック共重合体であって、共役ジエン部分の二重結合が80%以上水素添加され、好ましくは85%以上水素添加され、かつ、GPC法によるQ値が2.5以下、好ましくは2.3以下、ビニル芳香族化合物含有ゴム中のビニル芳香族化合物含量が平均で10~20重量%、好ましくは12~19重量%、メルトフローレート(MFR、JIS-K-6758、230℃)が1~15g/10分、好ましくは2~13g/10分であるビニル芳香族化合物含有ゴムである。

【0024】

本発明におけるビニル芳香族化合物含有ゴム(2A)は、オレフィン系共重合体ゴムもしくは共役ジエンゴムに対し、重合、反応等によりビニル芳香族化合物が結合しているゴム、例えば、スチレン-エチレン-ブテン-スチレン系ゴム(

SEBS)、スチレン-エチレン-プロピレン-スチレン系ゴム (SEPS)、スチレン-ブタジエン系ゴム (SBR)、スチレン-ブタジエン-スチレン系ゴム (SBS)、スチレン-イソプレン-スチレン系ゴム (SIS) 等のブロック共重合体又はこれらのゴム成分を水添したブロック共重合体等を挙げることができる。また、エチレン-プロピレン-非共役ジエン系ゴム (EPDM) にスチレン等のビニル芳香族化合物を反応させたゴムも好適に使用できる。

【0025】

ビニル芳香族化合物含有ゴム (2A) 中のビニル芳香族化合物含量が平均で 10 重量%未満又は 20 重量%を超えると結晶性ポリプロピレン系樹脂 (1) との親和性が好ましくなく、結果として衝撃強度、剛性が低下する。

【0026】

本発明のエチレン- α -オレフィンランダム共重合体ゴムとは、エチレンと α -オレフィンからなるランダム共重合体ゴムであり、そのようなゴムであれば特に制限はない。 α -オレフィンは炭素原子数 3 以上であり、例えば、プロピレン、ブテン、ペンテン、ヘキセン、ヘプテン、オクテン、デセン等が挙げられる。好ましくは、プロピレン、ブテン、ヘキセン、オクテンである。

ランダム共重合体ゴムとしては、エチレン-プロピレンランダム共重合体ゴム、エチレン-ブテンランダム共重合体ゴム、エチレン-ヘキセンランダム共重合体ゴム、エチレン-オクテンランダム共重合体ゴム等が挙げられ、好ましくは、エチレン-オクテンランダム共重合体ゴム (2B)、エチレン-ブテンランダム共重合体ゴム (2C)、エチレン-プロピレンランダム共重合体ゴム (2D) が挙げられる。

【0027】

本発明におけるエチレン-オクテンランダム共重合体ゴム (2B) とは、エチレンとオクテンのランダム共重合体ゴムのことである。エチレン-オクテンランダム共重合体ゴム (2B) のGPC法によるQ値は 2.5 以下、好ましくは 2.3 以下である。エチレン-オクテンランダム共重合体ゴム (2B) 中のオクテン含量は 15~45 重量%、好ましくは 18~42 重量%である。エチレン-オクテンランダム共重合体ゴムのメルトフローレート (MFR、JIS-K-675

8、190℃)は1.0~15.0g/10分、好ましくは、2~13g/10分である。

【0028】

エチレン-オクテンランダム共重合体ゴム(2B)のGPC法によるQ値が2.5を超えると剛性が低下する。エチレン-オクテンランダム共重合体ゴム(2B)中のオクテン含量が15重量%未満では衝撃強度に関して好ましくなく、45重量%を超えると剛性に関して好ましい結果が得られない。エチレン-オクテンランダム共重合体ゴム(2B)のメルトフローレート(MFR)が15g/10分を超えると衝撃強度に関して好ましくなく、又1.0g/10分未満では結晶性ポリプロピレン系樹脂(1)に対する分散が悪く衝撃強度に関して好ましい結果が得られない。

【0029】

本発明におけるエチレン-ブテンランダム共重合体ゴム(2C)とは、エチレンとブテンのランダム共重合体ゴムのことである。エチレン-ブテンランダム共重合体ゴム(2C)のGPC法によるQ値は2.7以下、好ましくは2.5以下である。エチレン-ブテンランダム共重合体ゴム(2C)中のブテン含量は15~35重量%、好ましくは17~33重量%である。エチレン-ブテンランダム共重合体ゴム(2C)のメルトフローレート(MFR、JIS-K-6758、190℃)は1~15g/10分、好ましくは、2~13g/10分である。

【0030】

エチレン-ブテンランダム共重合体ゴム(2C)のGPC法によるQ値が2.7を超えると剛性が低下する。エチレン-ブテンランダム共重合体ゴム(2C)中のブテン含量が15重量%未満では耐衝撃性に関して好ましくなく、35重量%を超えると剛性に関して好ましい結果が得られない。エチレン-ブテンランダム共重合体ゴムのメルトフローレート(MFR)が1g/10分未満では剛性及び衝撃強度に関して好ましくなく、又15g/10分を超えると結晶性ポリプロピレン系樹脂(1)に対する分散が悪く衝撃強度に関して好ましい結果が得られない。

【0031】

本発明におけるエチレン-プロピレンランダム共重合体ゴム(2D)とは、エチレンとプロピレンのランダム共重合体ゴムのことである。エチレン-プロピレンランダム共重合体ゴム(2D)のGPC法によるQ値は2.7以下、好ましくは2.5以下である。エチレン-プロピレンランダム共重合体ゴム(2D)中のプロピレン含量は20~30重量%、好ましくは22~28重量%である。エチレン-プロピレンランダム共重合体ゴム(2D)のメルトフローレート(MFR、JIS-K-6758、190℃)は1~15g/10分、好ましくは、2~13g/10分である。

【0032】

エチレン-プロピレンランダム共重合体ゴム(2D)のGPC法によるQ値が2.7を超えると剛性が低下する。エチレン-プロピレンランダム共重合体ゴム(2D)中のプロピレン含量が20重量%未満では衝撃強度に関して好ましくなく、30重量%を超えると剛性に関して好ましい結果が得られない。エチレン-プロピレンランダム共重合体ゴム(2D)のメルトフローレート(MFR)が1g/10分未満では剛性及び衝撃強度に関して好ましくなく、又15g/10分を超えると結晶性ポリプロピレン系樹脂(1)に対する分散が悪く衝撃強度に関して好ましい結果が得られない。

【0033】

このようなエチレン-オクテンランダム共重合体ゴム(2B)、エチレン-ブテンランダム共重合体ゴム(2C)、エチレン-プロピレンランダム共重合体ゴム(2D)はバナジウム化合物と有機アルミニウム化合物からなる触媒系、チーグラ-ナッタ触媒系又はメタロセン触媒系を用いて、溶液重合法、スラリー重合法、高圧イオン重合法又は気相重合法によって、エチレンと各種の α -オレフィンを共重合させることによって製造することができる。

【0034】

本発明の熱可塑性樹脂組成物全体に対するビニル芳香族化合物含有ゴム又はビニル芳香族化合物含有ゴム及びエチレン- α -オレフィンランダム共重合体ゴムからなるエラストマー(2)の含有量は10~30重量%である。エラストマーの含有量が10重量%未満の場合、衝撃強度が低下して好ましくなく、30重量

%を超える場合、剛性、耐熱性が低下する。

上記(2A)～(2D)のゴム成分を使用する場合、エラストマーを構成する各種ゴムの組成物全体に対する含有量は、ビニル芳香族化合物含有ゴム(2A)が3～15重量%、エチレン-オクテンランダム共重合体(2B)が0～15重量%、エチレン-ブテンランダム共重合体(2C)が0～10重量%、エチレン-プロピレンランダム共重合体(2D)が0～10重量%であることが好ましい。

上記(2A)～(2D)のゴム成分を使用する場合、エチレン-オクテンランダム共重合体(2B)を含むことが好ましく、さらにはエチレン-オクテンランダム共重合体(2B)とエチレン-ブテンランダム共重合体(2C)の両方を含むことが好ましい。

【0035】

更に本発明の熱可塑性樹脂組成物の各成分の重量%及び重量分率は次式1)～3)を満足することが好ましい。

$$1) (X_{pp}) + (X_{st}) + (X_{EOR}) + (X_{EBR}) + (X_{EPR}) + (X_{talc}) = 100$$

$$2) 0.20 \leq \{ [(Y_{BC}) \times (Y_{EP}) + (X_{st}) + (X_{EOR}) + (X_{EBR}) + (X_{EPR})] / 100 \} \leq 0.30$$

$$3) 0.1 \leq \{ (Y_{BC}) \times (Y_{EP}) / [(Y_{BC}) \times (Y_{EP}) + (X_{st}) + (X_{EOR}) + (X_{EBR}) + (X_{EPR})] \}$$

[式中、 (X_{pp}) は結晶性ポリプロピレン、 (X_{st}) はビニル芳香族化合物含有ゴム(2A)、 (X_{EOR}) はエチレン-オクテンランダム共重合体ゴム(2B)、 (X_{EBR}) はエチレン-ブテンランダム共重合体ゴム(2C)、及び (X_{EPR}) はエチレン-プロピレンランダム共重合体ゴム(2D)の重量%を示す。 (Y_{BC}) は結晶性エチレン-プロピレンブロックコポリマー(1A)の重量%、 (Y_{EP}) は結晶性エチレン-プロピレンブロックコポリマー(1A)中の第2セグメントであるエチレン-プロピレンランダムコポリマー部分の重量分率(重量分率は重量%/100である。)を示し、 (X_{talc}) はタルクの重量%を示す。]

かつ、本発明の熱可塑性樹脂組成物のメルトフローレート(MFR、JIS-

K-6758、230℃) が 35 g/10 分以上である。

【0036】

本発明の熱可塑性樹脂組成物の各成分の重量分率の関係式 2) における数値、 $[(Y_{BC}) \times (Y_{EP}) + (X_{st}) + (X_{EOR}) + (X_{EBR}) + (X_{EPR})] / 100$ が 0.20 未満では衝撃強度が好ましくなく、0.30 を超えると流動性が低下する。本発明の熱可塑性樹脂組成物の各成分の重量分率の関係式 3) における数値、 $(Y_{BC}) \times (Y_{EP}) / [(Y_{BC}) \times (Y_{EP}) + (X_{st}) + (X_{EOR}) + (X_{EBR}) + (X_{EPR})]$ が 0.1 未満では衝撃強度が好ましくない。また本発明の熱可塑性樹脂組成物のメルトフローレート (MFR、JIS-K-6758、230℃) が 35 未満では流動性が劣り、成形が困難となる。

【0037】

本発明のタルクとは、含水ケイ酸マグネシウムを粉砕したものである。その分子の結晶構造はパイロフィライト型三層構造を示しており、タルクはこの構造が積み重なったものである。特に結晶を単位層程度にまで微粉砕した平板状のものが好ましい。

【0038】

本発明で用いるタルクは、平均粒子径は 3 μ m 以下である。3 μ m より大きいものを用いた場合、本発明の熱可塑性樹脂組成物の衝撃強度の低下が大きく、光沢等の外観も悪くなる。タルクは無処理のまま使用しても良いが結晶性ポリプロピレン系樹脂 (1) との界面接着性を向上させ、また分散性を向上させる目的で公知の各種シランカップリング剤、チタンカップリング剤、高級脂肪酸、高級脂肪酸エステル、高級脂肪酸アミド、高級脂肪酸塩類あるいは他の界面活性剤で表面を処理したものを使用することができる。

ここでタルクの平均粒子径とは遠心沈降式粒度分布測定装置を用いて水、アルコール等の分散媒中に懸濁させて測定した篩下法の積分分布曲線から求めた 50% 相当粒子径 D_{50} のことを意味する。

【0039】

本発明で用いるタルクは、組成物全体に対して、15~25 重量%である。使用するタルクの重量%が 15 重量%未満の場合、剛性、耐熱性が低下し、25 重

量%を超える場合、衝撃強度に関して好ましくなく、外観も悪化する。

【0040】

本発明の熱可塑性樹脂組成物は下記 (a) ~ (c) の条件を充足するものである。即ち、先ず、

(a) 結晶性ポリプロピレン系樹脂 (1) とビニル芳香族化合物含有ゴム又はビニル芳香族化合物含有ゴム及びエチレン- α -オレフィンランダム共重合体ゴムからなるエラストマー (2) とを溶融混練させた際のビニル芳香族化合物含有ゴムに起因する小角X線散乱で得られる長周期が12~24 nmであることが必要である。

【0041】

小角X線散乱とは、公知の刊行物、例えば、「X線回折の手引き—理学電機(株)—1989年版」に記載されているとおりであり、2 θ 数度以下の小さな角度領域の散乱であり、その長周期とは、数十~数百Å程度の結晶質と非晶質の周期配列である。そして、ビニル芳香族化合物含有ゴムに起因する長周期は、ポリプロピレン部に起因する既知の回折ピーク以外の回折ピークをビニル芳香族化合物含有ゴムに起因すると見なすことによって求めることができる。

【0042】

ビニル芳香族化合物含有ゴムに起因する長周期は好ましくは12~23 nmである。24 nmを超えると結晶性ポリプロピレン系樹脂の長周期から大きく逸脱し、エラストマー相と結晶性ポリプロピレン系樹脂相の界面の接着強度(相互作用)が低下する。

【0043】

(b) 結晶性ポリプロピレン系樹脂 (1) とビニル芳香族化合物含有ゴム又はビニル芳香族化合物含有ゴム及びエチレン- α -オレフィンランダム共重合体ゴムからなるエラストマー (2) とを溶融混練させた際のエラストマー粒子とマトリックスであるポリプロピレンの界面付近にあるエラストマー粒子がマイクロ相分離し粒子の形態をとり、その粒子径が30 nm以下であることが必要である。

【0044】

エラストマー粒子とマトリックスであるポリプロピレンの界面付近の状態、そ

の界面付近にあるエラストマー粒子のミクロ相分離の状態は、透過型電子顕微鏡 (TEM) によって観察することができる。その粒子の形態は目視又は写真撮影によって判断することができ、その粒子径は、その倍率から換算して求めることができる。

【0045】

エラストマー粒子とマトリックスであるポリプロピレンの界面付近にあり、ミクロ相分離し、粒子の形態をとっているエラストマー粒子の粒子径は好ましくは 25 nm 以下である。エラストマー粒子とマトリックスであるポリプロピレンの界面付近にあり、ミクロ相分離したエラストマーが棒状、板状の形態をとったり、粒子の形態であっても、その径が 30 nm を超えると本発明の熱可塑性樹脂組成物の衝撃強度の低下を招き、好ましい結果が得られない。

【0046】

また、(c) 結晶性ポリプロピレン系樹脂 (1) の結晶性プロピレンホモポリマー部に帰属するガラス転移点 (Tg_1) と結晶性ポリプロピレン系樹脂 (1)、ビニル芳香族化合物含有ゴム又はビニル芳香族化合物含有ゴム及びエチレン- α -オレフィンランダム共重合体ゴムからなるエラストマー (2) 及びタルク (3) とを溶融混練させた際の結晶性プロピレンホモポリマー部に帰属するガラス転移点 (Tg_2) の差 ($\Delta Tg = Tg_1 - Tg_2$) が、4.0 ~ 7.0 °C であることが必要である。

【0047】

本発明のガラス転移点とは、非晶性高分子におけるガラス転移点であって、非晶性高分子がガラス状からゴム状に (又はその逆に) 変化する時の温度であり、損失弾性率の温度分散測定から得られる吸収ピークより求めることができる。結晶性ポリプロピレン系樹脂 (1) の場合、多くの場合は結晶性プロピレンホモポリマー部に帰属するガラス転移点 1 つのみが見られ、これを Tg_1 とする。結晶性ポリプロピレン系樹脂 (1)、ビニル芳香族化合物含有ゴム又はビニル芳香族化合物含有ゴム及びエチレン- α -オレフィンランダム共重合体ゴムからなるエラストマー (2) 及びタルク (3) とを溶融混練してなるポリマーの場合、結晶性プロピレンホモポリマー部に帰属するガラス転移点とエラストマー部に帰属す

るガラス転移点の2つが見られるが、これらのうち、結晶性プロピレンホモポリマー部に帰属するガラス転移点を Tg_2 とし、この2つのガラス転移点から結晶性プロピレンホモポリマー部に帰属するガラス転移点の差($\Delta Tg = Tg_1 - Tg_2$)を求めることができる。

【0048】

結晶性プロピレンホモポリマー部に帰属するガラス転移点の差($\Delta Tg = Tg_1 - Tg_2$)が4.0未満では結晶性ポリプロピレン樹脂(1)とビニル芳香族化合物含有ゴム又はビニル芳香族化合物含有ゴム及びエチレン- α -オレフィンランダム共重合体ゴムからなるエラストマー(2)との親和性が著しく低下し、本発明の熱可塑性樹脂組成物の衝撃強度の低下を招く。

【0049】

結晶性プロピレンホモポリマー部に帰属するガラス転移点の差($\Delta Tg = Tg_1 - Tg_2$)が3.0を超えると親和性が過剰となり、本発明の熱可塑性樹脂組成物の剛性、耐熱性の低下を招き、好ましい結果が得られない。

【0050】

本発明の熱可塑性樹脂組成物は、一軸押出機、二軸押出機、バンバリーミキサー、熱ロールなどの混練機を用いて製造することができる。各成分の混練機への添加、混合は同時に行なってもよく又分割して行なっても良く、例えば下記の方法等が挙げられるが、これらに制限されることはない。

(方法1) 結晶性ポリプロピレン系樹脂(1)とタルク(3)を混練した後、ビニル芳香族化合物含有ゴム又はビニル芳香族化合物含有ゴム及びエチレン- α -オレフィンランダム共重合体ゴムからなるエラストマー(2)(以下エラストマーと略称する。)を添加する方法。

(方法2) 予め結晶性ポリプロピレン系樹脂(1)にタルク(3)を高濃度に混練してマスターバッチとし、それを別途結晶性ポリプロピレン系樹脂(1)やエラストマー(2)等で希釈しながら混練する方法。

(方法3) 結晶性ポリプロピレン系樹脂(1)とエラストマー(2)を混練した後、タルク(3)を添加し混練する方法。

(方法4) 予め結晶性ポリプロピレン系樹脂(1)にエラストマー(2)を高

濃度に混練してマスターバッチとし、それに結晶性ポリプロピレン系樹脂（１）、タルク（３）を添加し混練する方法。

（方法５）予め結晶性ポリプロピレン系樹脂（１）とタルク（３）、結晶性ポリプロピレン系樹脂（１）とエラストマー（２）をそれぞれ混練しておき、最後にそれらを合わせて混練する方法。

【００５１】

混練に必要な温度は１７０～２５０℃で、好ましくは１９０～２３０℃である。混練に必要な時間は１～２０分、好ましくは３～１５分である。

【００５２】

更に、これらの混練機においてこれらの基本成分以外に、酸化防止剤、紫外線吸収剤、滑剤、顔料、帯電防止剤、銅害防止剤、難燃剤、中和剤、発泡剤、可塑剤、造核剤、気泡防止剤、架橋剤等の添加剤を本発明の目的に応じ適宜配合することができる。

【００５３】

本発明の熱可塑性樹脂組成物は、一般に採用されている射出成形方法により射出成形体に成形することができる。特に、ドアトリム、ピラー、インストルメンタルパネル、及びバンパー等の自動車内外装用射出成形体として好適に使用される。

【００５４】

【実施例】

以下実施例により本発明を説明するが、これらは単なる例示であり、本発明は要旨を逸脱しない限りこれら実施例に限定されるものではない。

次に実施例における物性値の測定法を以下に示す。

（１）メルトフローレート（ＭＦＲ）

ＪＩＳ－Ｋ－６７５８に規定された方法により測定した。２．１６ｋｇ荷重下、測定温度は１９０℃又は２３０℃であった。

【００５５】

（２）曲げ試験

ＪＩＳ－Ｋ－７２０３に規定された方法により測定した。射出成形により成形

された試験片を用いた。試験片の厚みは6.4 mmであり、スパン長さ100 mm、荷重速度2.0 mm/分の条件で曲げ弾性率 (FM) 及び曲げ降伏強度 (FS) を測定した。測定温度は23℃であった。

【0056】

(3) アイゾット衝撃強度 (IZOD)

JIS-K-7110に規定された方法により測定した。射出成形により成形された試験片を用いた。試験片の厚みは6.4 mmであり、成形の後にノッチ加工されたノッチ付きの衝撃強度を評価した。測定温度は23℃であった。それ以外の測定温度の場合は所定の温度の恒温槽で2時間状態調整をした後に測定した。

【0057】

(4) 脆化温度 (BP)

JIS-K-6758に規定された方法により測定した。射出成形により成形された25×150×2 mmの平板から所定の6.3×38×2 mmの試験片を打抜き抜き、所定の方法で測定した。

【0058】

(5) 加熱変形温度 (HDT)

JIS-K-7207に規定された方法により測定した。ファイバーストレスは18.6 kg/cm²であった。

【0059】

(6) 引っ張り試験

ASTM D638に規定された方法により測定した。射出成形により成形された試験片を用いた。試験片の厚みは3.2 mm、引っ張り速度は10 mm/分で、引っ張り破断点伸び (UE)、及び引っ張り降伏点強度 (YS) を評価した。測定温度は23℃であった。

【0060】

(7) エチレン- α -オレフィンランダム共重合体中のエチレン含量、プロピレン含量、ブテン含量、オクテン含量の測定

エチレン含量又はプロピレン含量についてはランダム共重合体のプレスシート

を作製し測定した赤外吸収スペクトルに現れるメチレン基 ($-\text{CH}_2-$) 及びメチル基 ($-\text{CH}_3$) の特性吸収の吸光度を用いて、ブテン含量についてはエチル基 ($-\text{CH}_2-\text{CH}_3$) の特性吸収の吸光度を用いて、オクテン含量についてはヘキシル基 ($-(\text{CH}_2)_5-\text{CH}_3$) の特性吸収の吸光度を用いて、検量線法により求めた。

【0061】

(8) 極限粘度

ウベローデ型粘度計を用いて濃度 0.1、0.2 及び 0.5 g/dl の 3 点について還元粘度を測定した。極限粘度は、「高分子溶液、高分子実験学 11」(1982 年共立出版株式会社刊) 第 491 頁に記載の計算方法すなわち、還元粘度を濃度に対しプロットし、濃度をゼロに外挿する外挿法によって求めた。

結晶性ポリプロピレンについては、溶媒としてテトラリンを溶媒として用い、温度 135℃ で測定した。エチレン-ブテンランダム共重合体ゴム及びエチレン-プロピレンランダム共重合体ゴムについては、溶媒としてキシレンを用い、温度 70℃ で測定した。

【0062】

(8-1) 結晶性エチレン-プロピレンブロックコポリマーの極限粘度

(8-1 a) プロピレンホモポリマー部分 (第 1 セグメント) の極限粘度: $[\eta]_p$

結晶性エチレン-プロピレンブロックコポリマーの第 1 セグメントであるプロピレンホモポリマー部分の極限粘度: $[\eta]_p$ はその製造時に、第一工程であるプロピレンホモポリマー部分の重合後に重合槽内よりプロピレンホモポリマーを取り出し、取り出されたプロピレンホモポリマーの $[\eta]_p$ を測定して求めた。

【0063】

(8-1 b) エチレン-プロピレンランダムコポリマー部分 (第 2 セグメント) の極限粘度: $[\eta]_{EP}$

結晶性エチレン-プロピレンブロックコポリマーの第 2 セグメントであるエチレン-プロピレンランダムコポリマー部分の極限粘度: $[\eta]_{EP}$ は、プロピレンホモポリマー部分の極限粘度: $[\eta]_p$ とエチレン-プロピレンブロックコポリ

マー全体の極限粘度： $[\eta]_T$ をそれぞれ測定し、エチレン-プロピレンランダムコポリマー部分の結晶性エチレン-プロピレンブロックコポリマー全体に対する重量比率： X を用いて次式から計算により求めた。

$$[\eta]_{EP} = [\eta]_T / X - (1/X - 1) [\eta]_P$$

$[\eta]_P$ ：プロピレンホモポリマー部分の極限粘度 (d l / g)

$[\eta]_T$ ：ブロックコポリマー全体の極限粘度 (d l / g)

【0064】

(8-1c) エチレン-プロピレンランダムコポリマー部分の結晶性エチレン-プロピレンブロックコポリマー全体に対する重量比率： X

エチレン-プロピレンランダムコポリマー部分の結晶性エチレン-プロピレンブロックコポリマー全体に対する重量比率： X は、プロピレンホモポリマー部分(第1セグメント)と結晶性エチレン-プロピレンブロックコポリマー全体の結晶融解熱量をそれぞれ測定し、次式を用いて計算により求めた。結晶融解熱量は、示差走査型熱分析(DSC)により測定した。

$$X = 1 - (\Delta H_f)_T / (\Delta H_f)_P$$

$(\Delta H_f)_T$ ：ブロックコポリマー全体の融解熱量 (c a l / g)

$(\Delta H_f)_P$ ：プロピレンホモポリマー部分の融解熱量 (c a l / g)

【0065】

(9) 結晶性エチレン-プロピレンブロックコポリマーのエチレン-プロピレンランダムコポリマー部分のエチレン含量： $(C2')_{EP}$

結晶性エチレン-プロピレンブロックコポリマーのエチレン-プロピレンランダムコポリマー部分のエチレン含量： $(C2')_{EP}$ は、赤外線吸収スペクトル法により結晶性エチレン-プロピレンランダムコポリマー全体のエチレン含量($C2'$) $_T$ (重量%)を測定し、次式を用いて計算により求めた。

$$(C2')_{EP} = (C2')_T / X$$

$(C2')_T$ ：ブロックコポリマー全体のエチレン含量(重量%)

$(C2')_{EP}$ ：エチレン-プロピレンランダムコポリマー部分のエチレン含量(重量%)

X ：エチレン-プロピレンランダムコポリマー部分の結晶性エチレン-プロピ

レンブロックコポリマー全体に対する重量比率

【0066】

(10) アイソタクチック・ペンタッド分率

アイソタクチック・ペンタッド分率とは、A. Zambelliらによって *Macromolecules*, 6, 925 (1973) に発表されている方法、すなわち ^{13}C -NMR を使用して測定されるポリプロピレン分子鎖中のペンタッド単位でのアイソタクチック連鎖、換言すればプロピレンモノマー単位が5個連続してメソ結合した連鎖の中心にあるプロピレンモノマー単位の分率である。ただし、NMR吸収ピークの帰属に関しては、その後発刊された *Macromolecules*, 8, 687 (1975) に基づいて行った。

具体的には ^{13}C -NMR スペクトルのメチル炭素領域の全吸収ピーク中の *mmmm* ピークの面積分率としてアイソタクチック・ペンタッド分率を測定した。この方法により英国 NATIONAL PHYSICAL LABORATORY の NPL 標準物質 CRM No. M19-14 Polypropylene PP/MWD/2 のアイソタクチック・ペンタッド分率を測定したところ、0.944 であった。

【0067】

(11) 分子量分布

ゲルパーミエーションクロマトグラフィー (GPC) 法により、下記の条件 (12-1) 又は (12-2) で測定した。

(11-1) 結晶性ポリプロピレン

GPC: Waters 社製 150C 型

カラム: 昭和電工社製 Shodex 80 MA 2本

サンプル量: 300 μl (ポリマー濃度 0.2 wt %)

流量: 1 ml/min

温度: 135 $^{\circ}\text{C}$

溶媒: σ -ジクロルベンゼン

東ソー社製の標準ポリスチレンを用いて溶出体積と分子量の検量線を作成した。検量線を用いて検体のポリスチレン換算の重量平均分子量、数平均分子量を求

め、分子量分布（Q 値）は重量平均分子量／数平均分子量から求めた。

【0068】

（11-2）エチレン- α -オレフィンランダム共重合体ゴム

GPC: Waters 社製 150C 型

カラム: 昭和電工社製 Shodex 80 MA 1 本

サンプル量: 300 μ l (ポリマー濃度 0.2 wt %)

流 量: 1 ml/min

温 度: 145℃

溶 媒: α -ジクロロベンゼン

東ソー社製の標準ポリスチレンを用いて溶出体積と分子量の検量線を作成した。検量線を用いて検体のポリスチレン換算の重量平均分子量、数平均分子量を求め、分子量分布（Q 値）は重量平均分子量／数平均分子量から求めた。

【0069】

（12）小角 X 線散乱で得られる長周期

理学製ローターフレックス RU200B を使用し、下記の条件で測定した。

対陰極: Cu 回転対陰極

検出器: P S P C、カメラ長: 1356 mm

X 線強度: 50 KV-100 mA、照射時間: 8 Hr

【0070】

（13）マイクロ相分離したエラストマーの粒子経

日立製 TEM-H8000、加速電圧: 200 KV を使用し、下記の条件で測定した。

染色法: RuO_4 -1% 水溶液による蒸気中で 60℃-2 時間。

サンプル調製: ウルトラマイクロトームを用い、ダイヤモンドナイフにより -50~-70℃ の温度下で 0.6 mm/秒 の速度で切削し、厚み 80~90 nm のサンプルを調製した。

【0071】

（14）ガラス転移点（ T_g ）及び差（ ΔT_g ）

固体粘弾性測定装置により測定し、以下に示す条件で行った。

固体粘弾性測定装置：セイコー電子工業社製スペクトロメーターSD5600

周波数：5 Hz

測定温度：-150℃～80℃

ガラス転移点 (T_g)：損失弾性率の温度分散測定から得られる吸収ピークより求めた。

差 ($\Delta T_g = T_{g1} - T_{g2}$)：結晶性ポリプロピレン系樹脂 (1) の結晶性ポリプロピレンホモポリマー部に帰属するガラス転移点 (T_{g1})、結晶性ポリプロピレン系樹脂 (1)、ビニル芳香族化合物含有ゴム又はビニル芳香族化合物含有ゴム及びエチレン- α -オレフィンランダム共重合体ゴムからなるエラストマー (2)、及びタルク (3) とを溶融混練させた際の結晶性ポリプロピレンホモポリマー部に帰属するガラス転移点 (T_{g2}) の差 ($\Delta T_g = T_{g1} - T_{g2}$) を求めた。

【0072】

(15) 外観

射出成形により成形された試験片を用いて目視により観察し、外観良好と外観不良の判定した。

【0073】

上記 (2)、(3)、(4)、(5) 及び (6) の物性評価用試験片は、次の射出成形条件下で作製した。組成物を熱風乾燥器で120℃で2時間乾燥後、東芝機械製IS150E-V型射出成形機を用い成形温度220℃、金型冷却温度50℃、射出時間15 sec、冷却時間30 secで射出成形を行った。

【0074】

以下の実施例及び比較例記載の熱可塑性樹脂組成物は、次のような条件で製造した。各成分の所定量を計量し、ヘンシェルミキサー及びタンブラーで均一に予備混合した後、二軸混練押出機 (日本製鋼所社製TEX44SS 30BW-2 V型) にて押出量50 kg/hr、スクリー回転数350 rpm、ベント吸引下で行った。スクリーは三条タイプのローターとニーディングディスクを混練ゾーン2ヶ所、おのおの第1フィード口、第2フィード口の次のゾーンに配置して構成した。

【0075】

表 1 : 結晶性ポリプロピレン系樹脂の物性

本発明の実施例及び比較例で使用了結晶性ポリプロピレン系樹脂の物性を表 1 に示した。使用了サンプルは結晶性エチレン-プロピレンブロックコポリマー (BC という) とプロピレンホモポリマー (PP という) で、BC のエチレン-プロピレンホモポリマー部分と PP 全体 (P 部 という) の GPC 法による Q 値、極限粘度 $[\eta]_p$ 、及びアイソタクチック・ペンタッド分率 $m m m m$ を示した。また、BC のエチレン-プロピレンランダムコポリマー部分 (EP 部 という) の極限粘度 $[\eta]_{EP}$ 、BC 中の EP 部の含量 (含量 1 という)、及び EP 部におけるエチレン含量 (含量 2 という) を示した。

【0076】

表 2 : ビニル芳香族化合物含有ゴム、エチレン- α -オレフィンランダム共重合体ゴムの物性

本発明の実施例及び比較例で使用了ゴムの物性を表 2 に示した。使用了ゴムは、エチレン-ブテンランダム共重合体ゴム (EBR-1 という)、2 種類のエチレン-オクテンランダム共重合体ゴム (EOR-1、及び-2)、4 種類のスチレン-エチレン-ブテン-スチレンブロック共重合体ゴム (SEBS-1、-2、-3、及び 4) であった。それらの MFR を示した。また、EBR-1、EOR-1、及び 2 についてはモノマー含量を、SEBS-1、-2、-3、及び 4 についてはスチレン含量を示した。

【0077】

表 3 : 結晶性ポリプロピレン系樹脂とエラストマーの配合割合

表 1 記載の結晶性ポリプロピレン系樹脂と表 2 記載のエラストマーとを溶融混練した際に満足すべき条件 (a)、及び (b) について検討した。その際に用いたポリマーとその配合割合を表 3 に示した。

【0078】

表 4 : 結晶性ポリプロピレン系樹脂とエラストマーの溶融混練ポリマーの特性

表 3 記載のポリマー種と配合割合からなるポリマーを二軸混練機で溶融混練し、所定の条件でプレス成形して試験片を用意した。その試験片を用いて得られた小角 X 線散乱による長周期と TEM によるエラストマーの粒子径の評価結果を表

4に示した。

【0079】

参考例 1

結晶性エチレン-プロピレンブロックコポリマー (BC) : 47重量%と、プロピレンホモポリマー (PP) : 38重量%と、スチレン-エチレン-ブテン-スチレンブロック共重合体ゴム (SEBS-1) : 15重量%を二軸混練機で熔融混練し、所定の条件で試験片をプレス成形した。その試験片を用いて、小角X線散乱を測定したところ、ビニル芳香族化合物含有ゴムに起因する長周期は22 nmであった。この値はポリプロピレンの長周期により近接した好ましい値であった。また、TEMでエラストマー粒子とポリプロピレンの界面付近を観察したところ、ミクロ相分離したエラストマー粒子は微細な粒子の形態をなしており、その粒子径は20 nmであった。即ち、本参考例1で用いたスチレン-エチレン-ブテン-スチレンブロック共重合体ゴム (SEBS-1) は、結晶性ポリプロピレン系樹脂とエラストマーとを熔融混練した際に満足すべき条件 (a)、及び (b) を満足した。

【0080】

参考例 2

結晶性エチレン-プロピレンブロックコポリマー (BC) : 47重量%と、プロピレンホモポリマー (PP) : 38重量%と、スチレン-エチレン-ブテン-スチレンブロック共重合体ゴム (SEBS-2) : 15重量%を二軸混練機で熔融混練し、所定の条件で試験片をプレス成形した。その試験片を用いて、小角X線散乱を測定したところ、ビニル芳香族化合物含有ゴムに起因する長周期は21 nmであった。この値はポリプロピレンの長周期により近接した好ましい値であった。また、TEMでエラストマー粒子とポリプロピレンの界面付近を観察したところ、ミクロ相分離したエラストマー粒子は微細な粒子の形態をなしており、その粒子径は18 nmであった。即ち、本参考例2で用いたスチレン-エチレン-ブテン-スチレンブロック共重合体ゴム (SEBS-2) は、結晶性ポリプロピレン系樹脂とエラストマーとを熔融混練した際に満足すべき条件 (a)、及び (b) を満足した。

【0081】

参考例3

結晶性エチレン-プロピレンブロックコポリマー（BC）：47重量%と、プロピレンホモポリマー（PP）：38重量%と、エチレン-オクテンランダム共重合体（EOR-1）：7重量%と、スチレン-エチレン-ブテンスチレンブロック共重合体ゴム（SEBS-1）：8重量%を二軸混練機で熔融混練し、所定の条件で試験片をプレス成形した。その試験片を用いて、小角X線散乱を測定したところ、ビニル芳香族化合物含有ゴムに起因する長周期は23 nmであった。この値はポリプロピレンの長周期により近接した好ましい値であった。また、TEMでエラストマー粒子とポリプロピレンの界面付近を観察したところ、マイクロ相分離したエラストマー粒子は微細な粒子の形態をなしており、その粒子径は20 nmであった。即ち、本参考例3で用いたスチレン-エチレン-ブテンスチレンブロック共重合体ゴム（SEBS-1）は、結晶性ポリプロピレン系樹脂とエラストマーとを熔融混練した際に満足すべき条件（a）、及び（b）を満足した。

【0082】

参考例4

結晶性エチレン-プロピレンブロックコポリマー（BC）：47重量%と、プロピレンホモポリマー（PP）：38重量%と、スチレン-エチレン-ブテンスチレンブロック共重合体ゴム（SEBS-3）：15重量%を二軸混練機で熔融混練し、所定の条件で試験片をプレス成形した。その試験片を用いて、小角X線散乱を測定したところ、ビニル芳香族化合物含有ゴムに起因する長周期は26 nmであった。また、TEMでエラストマー粒子とポリプロピレンの界面付近を観察したところ、マイクロ相分離したエラストマー粒子には棒状のものが混在していた。即ち、本参考例4で用いたスチレン-エチレン-ブテンスチレンブロック共重合体ゴム（SEBS-3）は、結晶性ポリプロピレン系樹脂とエラストマーとを熔融混練した際に満足すべき条件（a）、及び（b）を満足しなかった。

【0083】

参考例5

結晶性エチレン-プロピレンブロックコポリマー (BC) : 47重量%と、プロピレンホモポリマー (PP) : 38重量%と、スチレン-エチレン-ブテンスチレンブロック共重合体ゴム (SEBS-4) : 15重量%を二軸混練機で熔融混練し、所定の条件で試験片をプレス成形した。その試験片を用いて、小角X線散乱を測定したところ、ビニル芳香族化合物含有ゴムに起因する長周期は25 nmであった。また、TEMでエラストマー粒子とポリプロピレンの界面付近を観察したところ、ミクロ相分離したエラストマー粒子は棒状のものであった。即ち、本参考例5で用いたスチレン-エチレン-ブテンスチレンブロック共重合体ゴム (SEBS-4) は、結晶性ポリプロピレン系樹脂とエラストマーとを熔融混練した際に満足すべき条件 (a)、及び (b) を満足しなかった。

【0084】

表5 : 結晶性ポリプロピレン系樹脂、エラストマー、及びタルクの配合割合

表1記載の結晶性ポリプロピレン系樹脂、表2記載のエラストマー、及びタルクとを熔融混練した際に満足すべき条件 (c) について検討した。その際に用いたポリマーの種類、そしてタルクとの配合割合を表5に示した。

【0085】

表6 : 結晶性ポリプロピレン系樹脂、エラストマー、及びタルクの熔融混練ポリマーのガラス転移点の差 (ΔT_g) と組成物の物性

表5記載のポリマー種とタルク、その表に記載の配合割合からなるポリプロピレン系樹脂組成物を二軸混練機で熔融混練し、所定の条件で射出成形して試験片を用意した。その試験片を用いて得られた結晶性プロピレンホモポリマー部に帰属するガラス転移点の差 (ΔT_g)、及びその組成物の物性をの評価結果を表6に示した。

【0086】

実施例1

結晶性プロピレン-エチレンブロックコポリマー (BC) : 30重量%と、プロピレンホモポリマー (PP) : 25重量%と、エチレン-オクテンランダム共重合体ゴム (EOR-2) : 7.4重量%と、エチレン-ブテン-1ランダム共重合体ゴム (EBR-1) : 9.0重量%と、ビニル芳香族化合物含有ゴム (S

EB S-2) : 7.6 重量%と、平均粒子径 $2.5 \mu\text{m}$ のタルク : 21 重量%を、所定の条件で二軸混練機で溶融混練し、得られたポリプロピレン系樹脂組成物から試験片を射出成形した。その試験片を用いて得られた結晶性プロピレンホモポリマー部に帰属するガラス転移点の差 (ΔT_g) は 5.8°C で、結晶性ポリプロピレン系樹脂、エラストマー、及びタルクとを溶融混練した際に満足すべき条件 (c) を満足した。また、その組成物の MFR は $38 \text{ g}/10 \text{ 分}$ (測定温度 230°C) で、物性は表 6 に示した。

【0087】

実施例 2

結晶性プロピレン-エチレンブロックコポリマー (BC) : 30 重量%と、プロピレンホモポリマー (PP) : 26 重量%と、エチレン-オクテンランダム共重合体ゴム (EOR-1) : 7.4 重量%と、エチレン-ブテン-1 ランダム共重合体ゴム (EBR-1) : 8.0 重量%と、ビニル芳香族化合物含有ゴム (SEBS-2) : 7.6 重量%と、平均粒子径 $2.5 \mu\text{m}$ のタルク : 21 重量%を、所定の条件で二軸混練機で溶融混練し、得られたポリプロピレン系樹脂組成物から試験片を射出成形した。その試験片を用いて得られた結晶性プロピレンホモポリマー部に帰属するガラス転移点の差 (ΔT_g) は 5.8°C で、結晶性ポリプロピレン系樹脂、エラストマー、及びタルクとを溶融混練した際に満足すべき条件 (c) を満足した。また、その組成物の MFR は $42 \text{ g}/10 \text{ 分}$ (測定温度 230°C) で、物性は表 6 に示した。

【0088】

実施例 3

結晶性プロピレン-エチレンブロックコポリマー (BC) : 30 重量%と、プロピレンホモポリマー (PP) : 25 重量%と、エチレン-オクテンランダム共重合体ゴム (EOR-1) : 9.0 重量%と、エチレン-オクテンランダム共重合体ゴム (EOR-2) : 9.0 重量%と、ビニル芳香族化合物含有ゴム (SEBS-1) : 6.0 重量%と、平均粒子径 $2.5 \mu\text{m}$ のタルク : 21 重量%を、所定の条件で二軸混練機で溶融混練し、得られたポリプロピレン系樹脂組成物から試験片を射出成形した。その試験片を用いて得られた結晶性プロピレンホモ

リマー部に帰属するガラス転移点の差 (ΔT_g) は 5.3℃で、結晶性プロピレン系樹脂、エラストマー、及びタルクとを熔融混練した際に満足すべき条件 (c) を満足した。また、その組成物の MFR は 42 g/10 分 (測定温度 230℃) で、物性は表 6 に示した。

【0089】

実施例 4

結晶性プロピレン-エチレンブロックコポリマー (BC) : 30 重量%と、プロピレンホモポリマー (PP) : 26 重量%と、ビニル芳香族化合物含有ゴム (SEBS-2) : 23 重量%と、平均粒子径 2.5 μ m のタルク : 21 重量%を、所定の条件で二軸混練機で熔融混練し、得られたポリプロピレン系樹脂組成物から試験片を射出成形した。その試験片を用いて得られた結晶性プロピレンホモポリマー部に帰属するガラス転移点の差 (ΔT_g) は 4.5℃で、結晶性ポリプロピレン系樹脂、エラストマー、及びタルクとを熔融混練した際に満足すべき条件 (c) を満足した。また、その組成物の MFR は 46 g/10 分 (測定温度 230℃) で、物性は表 6 に示した。

【0090】

実施例 5

結晶性プロピレン-エチレンブロックコポリマー (BC) : 30 重量%と、プロピレンホモポリマー (PP) : 26 重量%と、エチレン-オクテンランダム共重合体ゴム (EOR-2) : 15.4 重量%と、ビニル芳香族化合物含有ゴム (SEBS-2) : 7.6 重量%と、平均粒子径 2.5 μ m のタルク : 21 重量%を、所定の条件で二軸混練機で熔融混練し、得られたポリプロピレン系樹脂組成物から試験片を射出成形した。その試験片を用いて得られた結晶性プロピレンホモポリマー部に帰属するガラス転移点の差 (ΔT_g) は 5.6℃で、結晶性ポリプロピレン系樹脂、エラストマー、及びタルクとを熔融混練した際に満足すべき条件 (c) を満足した。また、その組成物の MFR は 42 g/10 分 (測定温度 230℃) で、物性は表 6 に示した。

【0091】

比較例 1

結晶性プロピレン-エチレンブロックコポリマー (BC) : 30 重量%と、プロピレンホモポリマー (PP) : 26 重量%と、エチレン-オクテンランダム共重合体ゴム (EOR-1) : 7.4 重量%と、エチレン-ブテン-1ランダム共重合体ゴム (EBR-1) : 8.0 重量%と、ビニル芳香族化合物含有ゴム (SEBS-3) : 7.6 重量%と、平均粒子径 $2.5 \mu\text{m}$ のタルク : 21 重量%を、所定の条件で二軸混練機で溶融混練し、得られたポリプロピレン系樹脂組成物から試験片を射出成形した。その試験片を用いて得られた結晶性プロピレンホモポリマー部に帰属するガラス転移点の差 (ΔT_g) は 3.2°C で、結晶性ポリプロピレン系樹脂、エラストマー、及びタルクとを溶融混練した際に満足すべき条件 (c) を満足しなかった。また、その組成物の MFR は $38 \text{ g}/10 \text{ 分}$ (測定温度 230°C) で、物性は表 6 に示した。

【0092】

比較例 2

結晶性プロピレン-エチレンブロックコポリマー (BC) : 30 重量%と、プロピレンホモポリマー (PP) : 26 重量%と、エチレン-オクテンランダム共重合体ゴム (EOR-1) : 7.4 重量%と、エチレン-ブテン-1ランダム共重合体ゴム (EBR-1) : 8.0 重量%と、ビニル芳香族化合物含有ゴム (SEBS-4) : 7.6 重量%と、平均粒子径 $2.5 \mu\text{m}$ のタルク : 21 重量%を、所定の条件で二軸混練機で溶融混練し、得られたポリプロピレン系樹脂組成物から試験片を射出成形した。その試験片を用いて得られた結晶性プロピレンホモポリマー部に帰属するガラス転移点の差 (ΔT_g) は 5.0°C で、結晶性ポリプロピレン系樹脂、エラストマー、及びタルクとを溶融混練した際に満足すべき条件 (c) を満足しなかった。また、その組成物の MFR は $39 \text{ g}/10 \text{ 分}$ (測定温度 230°C) で、物性は表 6 に示した。

【0093】

比較例 3

本発明で使用するビニル芳香族化合物含有ゴム又はビニル芳香族化合物含有ゴム及びエチレン- α -オレフィンランダム共重合体ゴムからなるエラストマーの替わりに、エチレン- α -オレフィンランダム共重合体ゴムからなるエラストマ

ーを用いた場合（ビニル芳香族化合物含有ゴムを使用しない場合）、即ち、結晶性プロピレン系樹脂、エチレン- α -オレフィンランダム共重合体ゴムからなるエラストマー、及びタルクからなる熱可塑性樹脂組成物について、その物性を示した。

結晶性プロピレン-エチレンブロックコポリマー（BC）：30重量%と、プロピレンホモポリマー（PP）：26重量%と、エチレン-オクテンランダム共重合体ゴム（EOR-1）：23重量%と、平均粒子径 $2.5\mu\text{m}$ のタルク：21重量%を、所定の条件で二軸混練機で熔融混練し、得られたポリプロピレン系樹脂組成物から試験片を射出成形した。その試験片を用いて得られた結晶性プロピレンホモポリマー部に帰属するガラス転移点の差（ ΔT_g ）は 3.9°C で、結晶性ポリプロピレン系樹脂、エラストマー、及びタルクとを熔融混練した際に満足すべき条件（c）を満足しなかった。また、その組成物のMFRは $39\text{g}/10\text{分}$ （測定温度 230°C ）で、物性は表6に示した。

【0094】

結晶性ポリプロピレン系樹脂（1）、エラストマー（2）、及びタルク（3）からなる熱可塑性樹脂組成物において、結晶性ポリプロピレン系樹脂（1）とエラストマー（2）とを熔融混練した際の条件（a）、及び（b）、更に結晶性ポリプロピレン系樹脂（1）とエラストマー（2）とタルク（3）とを熔融混練してなる組成物の条件（c）を満足しなかった組成物である比較例1、及び条件（c）は満足するものの、条件（a）、及び（b）を満足しなかった組成物である比較例2に比べて、条件（a）、（b）、及び（c）を満足する実施例1、2、3、4及び5は、表6に示したとおり各物性が著しく低下することなく優れた物性であり、それらのバランスが保たれており、また、外観も良好であることがわかる。

【0095】

実施例1、2、3、4及び5は、比較例1及び2に比べてその物性において、特に、引張り破断点強度（UE）、アイゾット衝撃強度（IZOD）、及び脆化温度（BP）が改良されていることがわかる。そして、その改良によって、その他の物性が著しく低下することはない、物性のバランスが保たれていることがわ

かる。

【 0 0 9 6 】

実施例 1、2、3、4 及び 5 は、比較例 3 に比べてその物性において、特に、脆化温度（BP）がより低い値を示していることがわかる。即ち、ビニル芳香族化合物含有ゴムを用いて得られる樹脂組成物が条件（a）、（b）及び（c）を満足する場合、ビニル芳香族化合物含有ゴムを用いずエチレン- α -オレフィンランダム共重合体のみを用いて得られる樹脂組成物より、物性が優れており、また、外観も良好であることがわかる。

【0097】

【表 1】結晶性ポリプロピレン系樹脂の物性

サンプル	P 部			E P 部		
	Q 値	$[\eta]_P$ (dl/g)	mmmm	$[\eta]_{EP}$ (dl/g)	含量 1 (重量%)	含量 2 (重量%)
BC	4.0	0.8	0.99	6	11	32
PP	4.0	0.8	0.99	—	—	—

BC : エチレン-プロピレンブロックコポリマー

PP : プロピレンホモポリマー

P 部 : BC のプロピレンホモポリマー部分あるいは PP の全体

EP 部 : BC のエチレン-プロピレンランダムコポリマー部分

含量 1 : BC における EP 部の含量

含量 2 : EP 部におけるエチレン含量

mmmm : アイソタクチックペンタッド分率

【0098】

【表2】ビニル芳香族化合物含有ゴム、エチレン- α -オレフィンランダム共重合体ゴムの物性

サンプル	MFR		コモノマー 含量 (重量%)	スチレン 含量 (重量%)
	測定温度 190℃ (g/10 分)	測定温度 230℃ (g/10 分)		
EBR-1	2		32	
EOR-1	2		40	
EOR-2	5		24	
SEBS-1		9		13
SEBS-2		6		18
SEBS-3		0.8		20
SEBS-4		0.8		40

EBR-1 : エチレン-ブテン-1 共重合体ゴム

EOR-1、2 : エチレン-オクテン共重合体ゴム

SEBS-1、2、3、4 : ビニル芳香族化合物含有ゴム

【 0 0 9 9 】

【表 3】 結晶性ポリプロピレン系樹脂とエラストマーの配合割合

	組成 (w t %)						
	BC	PP	EOR-1	SEBS-1	SEBS-2	SEBS-3	SEBS-4
参考例 1	4 7	3 8		1 5			
参考例 2	4 7	3 8			1 5		
参考例 3	4 7	3 8	7	8			
参考例 4	4 7	3 8				1 5	
参考例 5	4 7	3 8					1 5

【0 1 0 0】

【表 4】結晶性ポリプロピレン系樹脂とエラストマーの溶融混練ポリマーの特性

	小角 X 線散乱による長周期 (n m) *	TEM によるエラストマーの 粒子径 (n m) **
参考例 1	2 2	2 0
参考例 2	2 1	1 8
参考例 3	2 3	2 0
参考例 4	2 6	棒状及び粒子
参考例 5	2 5	棒状

* : 結晶性ポリプロピレン系樹脂にエラストマーを溶融混練させた際のビニル芳香族化合物含有ゴムに起因する長周期

** : 分散エラストマー粒子とポリプロピレンの界面付近にあるマイクロ相分離したエラストマーの粒子径

【0101】

【表5】結晶性ポリプロピレン系樹脂、エラストマー、及びタルクの配合割合

	組成 (w t %)									
	BC	PP	EOR -1	EO R -2	EBR -1	SEB S -1	SEB S -2	SEB S -3	SEB S -4	タルク
実施例 1	30	25		7.4	9.0		7.6			21
実施例 2	30	26	7.4		8.0		7.6			21
実施例 3	30	25	9.0	9.0		6.0				21
実施例 4	30	26					23			21
実施例 5	30	26	15.4				7.6			21
比較例 1	30	26	7.4		8.0			7.6		21
比較例 2	30	26	7.4		8.0				7.6	21
比較例 3	30	26	23							21

【0 1 0 2】

【表 6】 結晶性ポリプロピレン系樹脂、エラストマー、及びタルクの溶融混練ポリマーのガラス転移点の差 (ΔT_g) と組成物の物性

	ΔT_g	MFR	YS	UE	FM	FS	IZO D	HDT	BP	外観
実施例 1	5.8	38	207	220	21100	313	4.5	72	-22	良好
実施例 2	5.8	42	198	263	22100	309	4.9	72	-23	良好
実施例 3	5.3	42	202	173	20000	303	4.5	71	-23	良好
実施例 4	4.5	46	196	500	20700	310	5.9	72	-32	良好
実施例 5	5.6	42	199	353	21800	306	5.3	73	-25	良好
比較例 1	3.2	38	200	80	23200	310	4.2	73	-19	—
比較例 2	5.0	39	206	62	23100	316	3.6	73	-13	—
比較例 3	3.9	39	200	240	22100	306	4.5	73	-21	不良

MFR : メルトフローレート ($g/10$ 分) : 測定温度 $230^{\circ}C$

YS : 引張り降伏点強度 (Kg/cm^2)

UE : 引張り破断点伸び (%)

FM : 曲げ弾性率 (Kg/cm^2)

FS : 曲げ降伏点強度 (Kg/cm^2)

IZOD : アイゾット衝撃強度 ($Kg \cdot cm/cm^2$)

HDT : 加熱変形温度 ($^{\circ}C$)

HR : ロックウエル硬度

BP : 脆化温度 ($^{\circ}C$)

ΔT_g : ポリプロピレンホモポリマー部に帰属するガラス転移点の差

【 0 1 0 3 】

【 発 明 の 効 果 】

本発明によるポリプロピレン樹脂組成物は、剛性、衝撃強度等の物性、及び流れ性等の加工性、成形性に優れ、加工成形品の外観も優れている。

本発明により提供されるポリプロピレン樹脂組成物はかかる物性を利用して射出成形品、特に自動車内外装用成形体に好適に用いられる。

【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 衝撃強度及び剛性度のバランスが良好で、射出成形加工性に優れたポリプロピレン系樹脂組成物及びその射出成形体を提供する。

【解決手段】 (1) 結晶性ポリプロピレン系樹脂、(2) ビニル芳香族化合物含有ゴム又はビニル芳香族化合物含有ゴム及びエチレン- α -オレフィンランダム共重合体ゴムからなるエラストマー、及び(3) 平均粒径 $3\mu\text{m}$ 以下のタルクとを溶融混練してなる熱可塑性樹脂組成物であって、結晶性ポリプロピレン系樹脂(1)とエラストマー(2)とを溶融混練させた際のビニル芳香族化合物含有ゴムに起因する小角X線散乱で得られる長周期、及びその際のポリプロピレンとの界面付近にあるエラストマー粒子の形態と粒子径、及び結晶性ポリプロピレン系樹脂(1)と上記組成物の結晶性プロピレンホモポリマー部に帰属するガラス転移点の差が、特定の条件を充足することを特徴とする。

【選択図】 なし

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [000002093]

1. 変更年月日	1990年 8月28日
[変更理由]	新規登録
住 所	大阪府大阪市中央区北浜4丁目5番33号
氏 名	住友化学工業株式会社

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [000003207]

1. 変更年月日	1990年 8月27日
[変更理由]	新規登録
住 所	愛知県豊田市トヨタ町1番地
氏 名	トヨタ自動車株式会社